

This Page Is Inserted by IFW Operations
and is not a part of the Official Record

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

**As rescanning documents *will not* correct images,
please do not report the images to the
Image Problem Mailbox.**

PAT-NO: JP02000146818A
DOCUMENT-IDENTIFIER: JP 2000146818 A
TITLE: METHOD AND DEVICE FOR CLASSIFYING
FINE PARTICLE
PUBN-DATE: May 26, 2000

INVENTOR-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
YOSHIDA, TAKEHITO	N/A
MAKINO, TOSHIHARU	N/A
SUZUKI, NOBUYASU	N/A
YAMADA, YUKA	N/A

ASSIGNEE-INFORMATION:

NAME	COUNTRY
MATSUSHITA GIKEN KK	N/A

APPL-NO: JP10314297

APPL-DATE: November 5, 1998

INT-CL (IPC): G01N015/02

ABSTRACT:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a classifying device, capable of classifying, with high accuracy, ultra fine particles having a grain size of the order of nm produced under a reduced pressure and capable of conveying them to an accumulation chamber of a higher vacuum.

SOLUTION: When aerosol is introduced from an aerosol generating area in a fine particle producing chamber 19 to a classifying device

3 by means of a differential pressure, the total pressure of an aerosol intake part constructed on the side of the classifying device 3 is set up to be equal to or higher than the total pressure in the aerosol generating area. With this arrangement, by increasing the flow velocity of carrier gas in the aerosol intake part 5, the static pressure in the intake part is decreased lower than the total pressure in the aerosol generating area, and therefore aerosol can be introduced from the aerosol generating area equal to or lower in total pressure than the classifying device 3, into the interior of the classifying device 3 having an equal or higher total pressure.

COPYRIGHT: (C)2000,JPO

(19) 日本国特許庁 (J P)

(12) 公開特許公報 (A)

(11) 許出願公開番号

特開2000-146818

(P2000-146818A)

(43) 公開日 平成12年5月26日 (2000.5.26)

(51) Int.Cl.⁷

G 0 1 N 15/02

識別記号

F I

G 0 1 N 15/02

テマコード (参考)

F

審査請求 未請求 請求項の数 8 O L (全 9 頁)

(21) 出願番号 特願平10-314297

(22) 出願日 平成10年11月5日 (1998.11.5)

(71) 出願人 390010021

松下技研株式会社

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1号

(72) 発明者 吉田 岳人

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1号 松下技研株式会社内

(72) 発明者 牧野 俊晴

神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1号 松下技研株式会社内

(74) 代理人 100082692

弁理士 藤合 正博

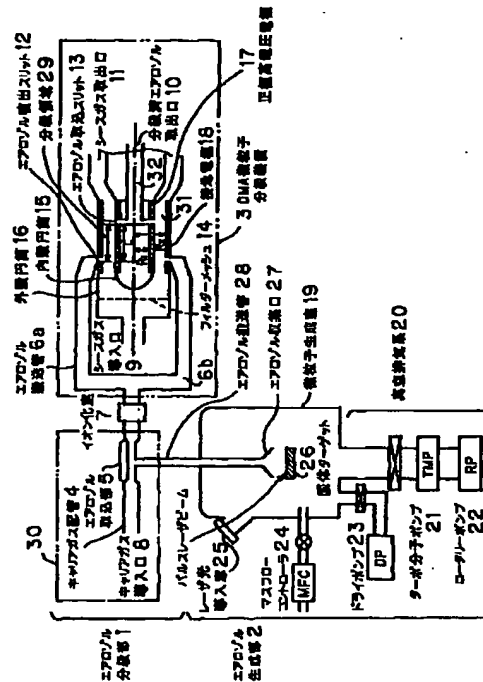
最終頁に続く

(54) 【発明の名称】 微粒子分級方法及び装置

(57) 【要約】

【課題】 減圧下で生成される粒径数nmレベルの超微粒子を高精度で分級し、さらに高真空側の堆積室へ搬送することが可能な分級装置を提供すること。

【解決手段】 微粒子生成室19のエアロゾル発生領域からこれを分級装置3へ、エアロゾルを差圧を利用して導入するに際し、エアロゾル発生領域の総圧に比較して、分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み部の総圧を同等あるいは高く設定する。この構成で、エアロゾル取り込み部5のキャリアガス流速を大きくすることにより、取り込み部の静圧をエアロゾル発生領域の総圧より下げ、総圧としては同等あるいは低いエアロゾル発生領域から、総圧としては同等あるいは高い値をもつ分級装置内部に、エアロゾルを導入することができる。



【特許請求の範囲】

【請求項1】 エアロゾル発生領域で発生されたエアロゾルを分級装置へ差圧を利用して導入し、微粒子を分級するに際して、前記エアロゾル発生領域の総圧に比較して、前記分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み部の総圧が、同等か或いは高くなるように設定したことを特徴とするエアロゾル中微粒子に対する微粒子分級方法。

【請求項2】 エアロゾル発生領域で発生されたエアロゾルを分級装置へ差圧を利用して導入し、微粒子を分級するに際して、前記分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み部が、特定のキャリアガスが流れる配管構造をしており、かつ前後の配管の径よりも細いことを特徴とするエアロゾル中微粒子に対する微粒子分級方法。

【請求項3】 エアロゾル発生領域で発生されたエアロゾルを分級装置へ差圧を利用して導入し、微粒子を分級するに際して、エアロゾル発生領域における媒質ガス種と異なった種類の媒質ガスが、分級装置内部のキャリアガスもしくはシースガスとして導入されることを特徴とするエアロゾル中微粒子に対する微粒子分級方法。

【請求項4】 エアロゾル発生領域における媒質ガスの密度よりも高い密度を有する媒質ガスが、分級装置内部のキャリアガスもしくはシースガスとして導入されることを特徴とする請求項3記載のエアロゾル中微粒子に対する微粒子分級方法。

【請求項5】 エアロゾル発生領域でエアロゾルを発生する段階と、発生されたエアロゾルを分級装置へ差圧を利用してエアロゾル取り込み部へ導入する段階と、エアロゾル取り込み部へ導入されたエアロゾルを微粒子分級部へ搬送する段階と、微粒子を分級する段階とから成り、

前記エアロゾルを分級装置へ導入するに際して、前記エアロゾル発生領域の総圧に比較して、前記分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み部の総圧が、同等か或いは高くなるように設定したことを特徴とするエアロゾル中微粒子に対する微粒子分級方法。

【請求項6】 ターゲット体にレーザビームを当ててエアロゾルを生成する手段と、生成されたエアロゾルを差圧を利用してエアロゾル分級手段へ取り込むエアロゾル取り込み手段と、エアロゾルから微粒子を分級する微粒子分級手段と、エアロゾルをエアロゾル取り込み手段から微粒子分級手段へ搬送するエアロゾル搬送手段とから成り、

エアロゾル取り込み手段は、前記エアロゾル発生手段の総圧に比較して、前記分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み手段の部位の総圧が、同等か或いは高くなるように設定されていることを特徴とするエアロゾル中微粒子に対する微粒子分級装置。

【請求項7】 エアロゾル取り込み手段は、エアロゾル生成手段とは分岐して延び、且つエアロゾル搬送のため

のキャリアガスが流れるキャリアガス配管に接続されており、またエアロゾル取り込み手段の取り込み部位の配管の径は前後のキャリアガス配管の径よりも細く設定されていることを特徴とする請求項6記載のエアロゾル中微粒子に対する微粒子分級装置。

【請求項8】 微粒子分級手段は、エアロゾル発生領域における媒質ガス種と異なった種類の媒質ガスが、微粒子分級手段内部のキャリアガスもしくはシースガスとして導入されるシースガス導入配管に接続されていることを特徴とする請求項6または7記載のエアロゾル中微粒子に対する微粒子分級装置。

【発明の詳細な説明】

【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は、エアロゾル中の微粒子に対して気相で動作する微粒子分級装置であって、特にエアロゾル中の対象微粒子を荷電させ、さらに静電界を印加することで、粒径に依存した移動度の差を利用して分級する形式の微粒子分級装置に関するものである。

【0002】

【従来の技術】微粒子分級装置の方式としては従来から種々のタイプのものがあるが、第1の従来例として、電気移動度分級法(Differential Mobility Analyzing: DMA)について述べる。これは、エアロゾル中の微粒子を分級するに際し、対象微粒子を荷電した後に静電界を印加し、微粒子の大きさ(粒径)により媒質ガス中の移動度が違うことを利用して行う分級法である。この技術についての詳細は例えば、ジャーナル・オブ・エアロゾル・サイエンス、第28巻(1997年)、193頁から206頁(J. Aerosol Sci. 28, pp193-206 (1997).)に記載されている。

【0003】第2の従来例として、微粒子線質量分級法(Particle Beam Mass Spectrometry: PBMS)について述べる。これは対象となる微粒子を封入した微粒子源から、高真空中に噴出する過程で微粒子を超音速線(ビーム)化する。次に、この微粒子線に電子線を照射することで荷電させ、同じく高真空中で電界を印加することで、微粒子の質量に依じた分級を行う方式である。この技術についての詳細は例えば、ジャーナル・オブ・エアロゾル・サイエンス、第26巻(1995年)、745頁から756頁(J. Aerosol Sci. 26, pp745-756 (1995).)に記載されている。

【0004】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、上記第1の従来例では、元来大気圧のエアロゾルからサンプリングし分級することを前提に開発が始まったこともあり、分級装置内部の動作ガス圧が高く、最近の減圧型DMAでも50-100 Torr以上の動作圧力が必要と考えられる。一方、機能材料化する目的で粒径数nm(ナノメートル)、特に10nm以下の超微粒子を物理

10

20

30

40

50

的気相中で生成するためには、ガス圧50 Torr以下のできる限り質量の小さい希ガス雰囲気で行うことが望ましい。このように生成された超微粒子を、分級・堆積のプロセスを経て、機能材料として用いるためには、分級装置としてはより低圧での動作が可能なDMAが必要となってくる。何故なら、生成領域から分級装置にエアロゾルを流入させるためには、差圧導入を用いることが最も有効だからである。また、DMAの分級精度は、エアロゾル中対象微粒子のブラウン拡散の度合いにより決定されるため、生成領域で必要とされるような軽い希ガスを媒質ガスとして用いることによって、劣化して行く傾向を持つ。

【0005】次に第2の従来技術によって、粒径数nmの超微粒子を分級するためには、超微粒子を微粒子源からの噴出過程でビーム化するため流体力学的レンズの設計が困難になって来る。また、装置のサイズを常識的な範囲の装置の大きさに留めるかぎりは、分級部真空槽壁面の電気的接地が0.1ボルト(V)以下の精度になる必要がある。

【0006】本発明は上記の課題に鑑みなされたものであって、減圧下例えば50 Torr以下で生成される粒径数nmレベルの超微粒子を効率よくサンプリングして高精度の分級を行い、さらに高真空側の堆積室へ分級済み超微粒子を搬送することが可能な、DMA型の分級装置を提供することを目的とする。

【0007】

【課題を解決するための手段】上記課題を解決するために、本発明のDMA型分級装置は、エアロゾル発生領域からこれを分級装置へ差圧を利用して導入するに際し、エアロゾル発生領域の総圧に比較して、分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み部の総圧が、同等あるいは高く設定されている。この構成で、分級装置にエアロゾルを取り込むためには、取り込み部のキャリアガス流速を大きくすることにより、静圧を下げる必要がある。これにより、取り込み部の静圧をエアロゾル発生領域の総圧より下げることができれば、総圧としては同等かあるいは低いエアロゾル発生領域から総圧としては同等かあるいは高い値をもつ分級装置内部に、エアロゾルを導入することができる。

【0008】また、本発明のDMA型分級装置は、分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み部が、特定のキャリアガスが流れる配管構造をしており、かつ前後の配管の径よりも細く設定されているため、エアロゾル取り込み部における局所的キャリアガスの流速が高まる構造となっている。これにより、分級装置側エアロゾル取り込み部の静圧をより効果的に下げることが可能としている。

【0009】さらに、本発明のDMA型分級装置は、エアロゾル発生領域における媒質ガス種と異なった種類の媒質ガス、特にエアロゾル発生領域における媒質ガス種

より質量の大きい媒質ガスが、分級装置内部のキャリアガスもしくはシースガスとして導入される構成をとっている。これにより、さらに効果的に分級装置のエアロゾル取り込み部の静圧を下げることになり、ひいてはより効率的にエアロゾルを分級装置に取り込むことができる。それと同時に、DMA型分級装置内における媒質ガス(キャリアガスもしくはシースガス)の質量が重いことは、分級領域での対象超微粒子のブラウン拡散を抑制するので結果として分級精度が上がることにもなる。

【0010】

【発明の実施の形態】本発明の請求項1に記載の発明は、エアロゾル発生領域からエアロゾルを分級装置へ差圧を利用して導入する方式のDMA微粒子分級方法において、エアロゾル発生領域の総圧に比較して、分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み部の総圧が、同等あるいは高く設定されている。この構成で、分級装置にエアロゾルを取り込むために、取り込み部にキャリアガスを大きな流速で流す構造とすることにより、取り込み部の静圧を下げている。これにより、取り込み部の静圧をエアロゾル発生領域の総圧より下げることができれば、総圧としては同等かあるいは低いエアロゾル発生領域から、総圧としては同等かあるいは高い値をもつ分級装置内部に、エアロゾルを導入することが可能となる。

【0011】ここで、請求項2に記載のように、分級手段側に構成されたエアロゾル取り込み部が、特定のキャリアガスが流れるようになっており、かつエアロゾル取り込み部位の径は、その前後の配管の径よりも細く設定されているため、エアロゾル取り込み部における局所的キャリアガスの流速が高まる構造となっている。これにより、分級装置側エアロゾル取り込み部の静圧をより効果的に下げることが可能としている。

【0012】さらに、請求項3、4に記載のように、エアロゾル発生領域における媒質ガス種と異なった種類の媒質ガス、特にエアロゾル発生領域における媒質ガス種より質量の大きい媒質ガスが、分級手段内部のキャリアガスもしくはシースガスとして導入される構成をとっている。これにより、さらに効果的に分級装置のエアロゾル取り込み部の静圧を下げることになり、延いてはより効率的にエアロゾルを分級装置に取り込むことができる。同時に、DMA微粒子分級装置内における媒質ガス(キャリアガスもしくはシースガス)の質量が重いために、分級領域での対象超微粒子のブラウン拡散による空間的散逸を抑制するので、結果として分級精度が上がることも繋がる。

【0013】(実施の形態)次に、本発明における実施の形態について説明をする。図1に、本実施の形態における微粒子分級装置の断面模式図を示す。図1は大きく分類して、エアロゾル中の微粒子を分級するエアロゾル分級部1と、微粒子を含むエアロゾルを生成(発生)するエアロゾル生成部2により構成されている。さらに、

10

20

30

40

50

エアロゾル分級部1は2重円筒微分形DMA微粒子分級装置本体3、エアロゾル取込部5、エアロゾル搬送管6などから構成されている。

【0014】エアロゾル生成部2は微粒子生成室19とその真空排気系20などから構成されている。エアロゾル生成部2は、微粒子を含むエアロゾルを生成するための本体となる微粒子生成室19と、微粒子生成室19に設けられ微粒子生成室20内に設置された固体ターゲット26に向けてパルスレーザビームを導入する導入窓25と、固体ターゲット26から放出されたエアロゾルをエアロゾル分級部2へ送給する第1のエアロゾル搬送管28とから構成され、第1のエアロゾル搬送管28の一端は微粒子分級生成室19内の固体ターゲット26設置部分まで延びてこの先端にエアロゾルを収集するエアロゾル収集口27が設けられている。微粒子生成室19には、真空排気系20としてターボ分子ポンプ21と、ロータリーポンプ22とが接続されている。また微粒子生成室19には、この微粒子生成室の内部を乾燥させるためのドライポンプ23が接続されるとともに、マスフローコントローラ24が接続されている。

【0015】エアロゾル分級部1は大きく分けて微粒子生成部2において生成されたエアロゾルを取り込むエアロゾル取込み装置30と、取り込まれたエアロゾルから微粒子を分級する微粒子分級装置3とから構成されている。

【0016】エアロゾル取込み装置30は、上記第1のエアロゾル搬送管28の他端に連結されエアロゾル生成室19から送給されたエアロゾルを取り込むエアロゾル取込部5と、一端がエアロゾル取込部5に接続されたキャリアガス配管4と、キャリアガス配管4とは反対側において一端がエアロゾル取込部5に接続されエアロゾル取込部5に取り込まれたエアロゾルを微粒子分級装置3へ向けて送給する第2のエアロゾル搬送管6とから構成されている。このエアロゾル取込み装置30は図2に拡大して示すように、エアロゾル取込部5、キャリアガス配管4、第2のエアロゾル搬送管6の部分がいずれも管状体から構成されており、キャリアガス配管4およびエアロゾル搬送管6の直径に比べてエアロゾル取込部5の直径が小さな寸法に設定されている。また、キャリアガス配管4の他端にはキャリアガス導入口8が設けられ、このキャリアガス導入口8からはキャリアガスがエアロゾル取込部5の方へ向けて送り込まれる。キャリアガスはエアロゾル取込部5に取り込まれたエアロゾルを微粒子分級装置3へ向けて搬送する役割を持つ。なお、エアロゾル取込み装置30と微粒子分級装置3との間にはエアロゾルをイオン化するイオン化室7が設けられている。

【0017】この実施の形態において、微粒子分級装置3にはDMA微粒子分級装置が採用されている。この微粒子分級装置3は、装置本体となる筒状の外殻円筒16

と、外殻円筒16の内部に配置された内殻円筒15と、先に述べた第2のエアロゾル搬送管6とから構成されている。外殻円筒16は、基端部（後端部：エアロゾルの流れる方向先方を前方或いは先方とし、逆方向を後方とする）および先端部が開放された筒状体から成り、基端部には外殻円筒16から段差状に縮径したシースガス導入口9が設けられている。また、外殻円筒16の長手方向中間部の内部には、当該外殻円筒16と内殻円筒15との間に出来た隙間により通路31が形成され、この通路31の先方にはシースガス取出口11が設けられている。さらに、外殻円筒16の長手方向中間部の側面の複数箇所には、当該外殻円筒16の内外を連通する微細な隙間により成るエアロゾル噴出スリット12が形成されている。

【0018】内殻円筒15は外殻円筒16よりも小さな径を持つ筒状体から成り、その後端部は密閉される一方、先端部は開放されたキャップ構造を有している。また、内殻円筒15の先端寄り部分の側面の複数箇所には、通路31と内殻円筒15の内部とを連通する微細な隙間により成るエアロゾル取込スリット13が形成されている。さらに、内殻円筒15は、その先端部分において上記エアロゾル取込スリット13部分から先方へ延びるエアロゾル取出管32に接続され、このエアロゾル取出管32の先端には分級済のエアロゾルが取り出されるエアロゾル取出口10が形成されている。

【0019】第2のエアロゾル搬送管6は、微粒子分級装置3部分においては、分岐して複数（図1では2つ）の分岐管6a、6bになり、両分岐管6a、6bの先端は外殻円筒16の側面に形成されたエアロゾル噴出スリット12に外側から接続されている。

【0020】本実施の形態では、シリコン（Si）やゲルマニウム（Ge）など高純度半導体の固体ターゲット26に、パルスレーザビームを集光照射することで、固体ターゲット26の表面からアプレート（脱離・射出）されたイオン・原子・クラスタを、ヘリウム（He）などの希ガスが充満した物理的気相中で再凝縮させることで微粒子化させる。このとき、生成される微粒子の粒径分布は、ターゲット材料種、パルスレーザビームの照射条件（波長、パルス幅、エネルギー密度）、希ガス圧力、ターゲットからの距離・方向などによって変化する。粒径分布に最も大きな影響を与えるのは、希ガス圧力である。半導体固体材料としてSi、希ガスとしてHeを用いた場合、概ねガス圧が、3-20 Torrで、粒径が数nmから数10nm、最大でも50nmの、いわゆるナノ微粒子が形成される。

【0021】さらに具体的に本実施の形態におけるナノ微粒子の生成方法について述べる。微粒子生成室19は、表面露出原子数の大きいナノ微粒子（粒径5nmでは約40%が表面露出原子となる）が酸化や不純物汚染に極めて敏感であることから、超高真空対応に電界研磨

10

20

30

40

50

を施されたSUS304合金を用いて構成されている。接続される各バルブ・フランジも200℃バークが可能で超高真空対応品を使用している。この微粒子生成室19を、ターボ分子ポンプ21を主ポンプ、ロータリーポンプ22をバックアップポンプとして排気することにより、到達真空度として、 10^{-10} Torr台を達成している。ナノ微粒子生成時には、マスフローコントローラ24を介して高純度半導体プロセス用Heガス(純度99.9999%以上)を200sccmの一定流量で導入する。マスフローコントローラ24及び高純度半導体

【0022】上述の減圧He雰囲気において、微粒子生成室19に設置され、8rpm(回転/分)の角速度で自転している固体ターゲット26に、パルスレーザビームを石英製のレーザ光導入窓25を通して集光照射することで、固体ターゲット26の表面においてアブレーションを起こす。ここで、固体ターゲット26としては高純度Si単結晶基板(面方位(100)、比抵抗 $10\Omega\cdot\text{cm}$)を使用した。パルスレーザビームの集光照射としては、QスイッチNd:YAGレーザの第2高調波(波長:532nm、パルスエネルギー:10mJ、パルス幅:40ns、繰り返し周波数:10Hz)を、固体ターゲット26の表面上で $10\text{J}/\text{cm}^2$ のエネルギー密度になるよう集光照射している。

【0023】固体ターゲット26の表面からアブレート(脱離・射出)されたSi種(イオン・原子・クラスター)は、雰囲気Heの原子と衝突を繰り返すことにより当初の射出運動エネルギーを雰囲気Heガスへ散逸しつつ、Si種どうしの会合が促進されることで、物理的気相中での凝縮すなわちナノ微粒子生成が起こる。このとき、生成されるナノ微粒子の粒径分布は、ターゲット材料種、パルスレーザビームの照射条件(波長、パルス幅、エネルギー密度)、ターゲットからの距離・方向、雰囲気希ガス圧力などによって変化する。

【0024】粒径分布に最も大きな影響を与えるのは雰囲気希ガス圧力である。これがある閾値を下回ると急激に気相でのナノ微粒子生成はなされにくくなり、射出Si種の大半は堆積基板上で非晶質Si薄膜として凝縮するようになる。この閾値は、材料としてSiとHeを用い、レーザとしてパルス幅が数から数十nsのQスイッチレーザを用いた場合、3-5Torr付近にある。また、雰囲気希ガス圧力がこの閾値を超えて高くなり過ぎると、ナノ微粒子どうしの凝集が急激に発生し出し、見かけ上20nm以上の微粒子が生成されたり、さらにこれらがブドウの房状に凝集したものが多数見受けられるようになる。これは、射出Si種の雰囲気希ガスによ

る閉じ込め効果(ブルームの閉じ込め効果)が顕著になることで射出Si種の空間密度が上がり過ぎるためである。

【0025】そこで、本実施の形態では、ナノ微粒子生成が起こる上でなるべく低い雰囲気He圧力として、10.0 Torrを設定した。また、固体ターゲット26表面からの距離が長くなるにつれても微粒子の成長が促進される傾向がある。したがって、本実施の形態では、固体ターゲット26表面の鉛直上3.0cmにエアロゾル収集口27を設け、気相で生成したナノ微粒子を雰囲気Heガスとともにエアロゾルとして引き出すことにより、運動エネルギーを散逸させて気相に滞留することで不要な凝集による大粒化を抑制している。ここで収集されたSiナノ微粒子を含有しHeガスを媒質ガスとするエアロゾルは、エアロゾル搬送管28を通して、エアロゾル分級部1のエアロゾル取込部5に流入する。

【0026】本実施の形態のDMA微粒子分級装置3では、エアロゾル生成部2の総圧に比較して、エアロゾル分級部1側に構成されたエアロゾル取込部5の総圧が、同等あるいは高く設定されている。この構成で、DMA微粒子分級装置3にエアロゾルを取り込むために、エアロゾル取込部5にキャリアガスを大きな流速で流す構造とすることにより、エアロゾル取込部5の静圧を下げている。これにより、エアロゾル取込部5の静圧をエアロゾル発生領域の総圧より下げることができれば総圧としては同等かあるいは低いエアロゾル発生領域から、総圧としては同等かあるいは高い値をもつDMA微粒子分級装置3内部に、エアロゾルを導入することが可能となる。

【0027】上述の構成によって、Siナノ微粒子とHe媒質ガスからなるエアロゾルが、エアロゾル搬送管28を通して、エアロゾル分級部1のエアロゾル取込部5に流入する機構を、エアロゾル取込部5周辺の拡大図(図2)を用いて若干詳しく説明する。

【0028】対象エアロゾルがエアロゾル搬送管28を通して、エアロゾル分級部1のエアロゾル取込部5に導入されるよう緒条件を設計するためには、総圧(p_{op} とする)なる微粒子生成室19及びエアロゾル搬送管28から、静圧(p_t とする)なるエアロゾル取込部5への流入状況を流体力学的に解析する必要がある。図2に示すように、微粒子生成室19の内部における実質的流速は無視でき、エアロゾル取込部5内部では、流速(q_t とする)の層流があるとしている。ここで一般に、媒質の静圧 p 、総圧 p_o 、密度 ρ 、流速 q の間には流体力学のベルヌーイの定理から、次の第(1)式で表わされる関係が成り立っている。

【数1】

$$P + \frac{\rho q^2}{2} = P_o$$

..... (1)

【0029】以降、添え字「p」が微粒子生成室19の内部を、添え字「t」がエアロゾル取込部5の内部を示すものとする。これに気体分子運動論的解析を加味する*

$$q_p^2 = \frac{2\gamma}{\gamma-1} \frac{P_{op}}{P_p} \left\{ 1 - \left(\frac{P_{ot} - \frac{P_t q_t^2}{2}}{P_{op}} \right)^{\frac{\gamma-1}{\gamma}} \right\}$$

..... (2)

【0030】ここで γ は媒質ガスの比熱比で気体分子の構造によって決まるものである。Ar（アルゴン）やHeなどの希ガス（単原子気体）では、気体の種類によらず1.667である。本実施の形態では、キャリアガスとして、総圧25 TorrのArを、微粒子生成室19側のエアロゾル媒質ガスとして、総圧10 TorrのHeを採用している。この設定においては、エアロゾル取込部5での流速 q_t が、260 m/sに到達すると、エアロゾル搬送管28からエアロゾル取込部5への流入が可能となる。また、エアロゾル取込部5での流速 q_t には上限があって、その値は336 m/sである。また、エアロゾル搬送管28からエアロゾル取込部5への流入流速 q_p にも上限があって、その値は1680 m/sである。なお上記2種類の流速上限値は圧力設定にはよらず、気体種類（分子量、分子構造）と温度のみにより決まるもので、正しく音速である。

【0031】さらに、(数2)から特に、エアロゾル取込部5での流速 q_t を上げることににより p_t が下がり、効果的にエアロゾルの取り込みを促進できることが判明するその他の各設定パラメータ： ρ_t 、 P_{ot} 、 ρ_p 、 P_{op} が、流入流速 q_p に及ぼす効果を導くことができる。その結果を(表1)にまとめておく。

【表1】

キャリアガス流速 q_t	q_t^2
キャリアガス密度 ρ_t	ρ_t
キャリアガス総圧 P_{ot}	P_{ot}
エアロゾル媒質ガス密度 ρ_p	ρ_p^{-1}
エアロゾル媒質ガス総圧 P_{op}	P_{op}

【0032】本実施の形態では、キャリアガスArの流量を2.0 l/min（標準状態）と設定している。エアロゾルの取り込みにおいては、前述のようにこの流量が多いほど有利であるが、後述するように、あまり上げてしまうとシースガスとの比率が上がることで、分級分解能が低下してしまうからである。エアロゾル取込部5において、この流量（2.0 l/min）を先の流速 q_t 上限速度336 m/sの80%で達成するよう設定す※50

*ことにより、エアロゾル搬送管28からエアロゾル取込部5への流入速度 q_p の2乗を、次の(2)式で表現することができる。

【数2】

10※ると、エアロゾル取込部5の径は、2.5 mmとすべきことが導かれる。キャリアガス配管4としては、クリーン度が高いEP管の入手し易さと、配管全体のコンダクタンス確保の必要性から、内径4.3 mmの1/4インチ配管を使用しているため、エアロゾル取込部5では図2に示すようにくびれ構造をとっている。ここで、エアロゾル取込部5でのキャリアガス流速 q_t を上限速度336 m/sの80%と設定すると、エアロゾル搬送管28からエアロゾル取込部5への境界領域での流入流速 q_p は、338 m/sとなり実用上十分な値が確保される。

【0033】上述の機構で、エアロゾル分級部1のうちエアロゾル取込部5に導入されたエアロゾルは、生成当初はSiナノ微粒子とHe媒質ガスから構成されていたが、キャリアガス導入口8から導入されるキャリアガスであるアルゴン（Ar）と混合されるため、媒質ガスがAr+Heの混合ガスであるエアロゾルとなって、DMA微粒子分級装置本体3に向かって搬送され始める。次に、イオン化室7を通過する際に内部に設置された放射性同位体アメリカシウム（ ^{241}Am ）の発する放射線により、Siナノ微粒子が荷電する。この時の荷電率は、ナノ微粒子の粒径とエアロゾル搬送管6内部の圧力（主に総圧）に依存するが、本実施の形態では粒径5 nmのSiナノ微粒子に対して、約 10^{-5} の率で1個に荷電することができる（圧力10-100 Torrを想定）。

【0034】エアロゾル搬送管6はDMA微粒子分級装置本体3に流入する前に、対称な形で2系統に分岐される。DMA微粒子分級装置本体3は、2重円筒微分形DMAの形式である。これは同心状に配置された内殻円筒15と外殻円筒16を基本に構成されている。2系統に分岐されたエアロゾル搬送管6は、2重円筒構造の共通中心軸に対称な形状で、DMA微粒子分級装置本体3に接続されている。その他に、DMA微粒子分級装置本体3には、シースガス導入口9、分級済みエアロゾル取出口10、シースガス取出口11が接続されている。ここで、シースガス取出口11は、エアロゾル搬送管6と同様に、2重円筒構造の共通中心軸に対称な形状で接続されている。

【0035】ここで、DMA微粒子分級装置本体3の動作の概略を説明する。まず、シースガス導入口9より、シースガスとしてArガスが、2.0 l/minの流量で

導入される。このシースArガスは、フィルターメッシュ14を介して、外殻円筒16と内殻円筒15との空間（ここが狭義での分級領域29になる）に流入することで、分級領域29では効果的に層流となることができる。流入するシースArガスにはほぼ等しい流量が、シースガス取出口11から大型メカニカルブースターポンプが接続されたロータリーポンプにより排出される。一方、媒質ガスは、Ar+Heの混合ガスから成っており、Siナノ微粒子を含有するエアロゾルはDMA微粒子分級装置本体3の2重円筒構造の共通中心軸に対称な形状に分岐した、エアロゾル搬送管6から、エアロゾル噴出スリット12を通して、分級領域29に導入される。

【0036】分級領域29では、内殻円筒15の外壁に貼りつけられた正極高電圧電極17と、外殻円筒16の内壁に貼りつけられた接地電極18により、共通中心軸に放射状の静電界を印加されている。エアロゾル噴出スリット12から分級領域29に導入された荷電されていないSiナノ微粒子は、層流状のシースガスの流れに乗って、エアロゾル噴出スリット12からシースガス取出口11の方向（図1の中では左から右）に搬送され、シースガス取出口11から排出される。イオン化室7にて荷電されたSiナノ微粒子は分級領域29に形成された静電界により偏向する。特に負に荷電されたSiナノ微粒子は、内殻円筒15の側に引き寄せられ、一部はエアロゾル取込スリット13を経て、分級済エアロゾル取出口10から取り出すことができる。

【0037】分級領域29での荷電微粒子の軌跡は、原理的には、荷電微粒子のシースガス中での移動度、シースガスによる横方向搬送速度、静電界強度分布、幾何学形状（分級長L、内殻円筒径R₁、外殻円筒径R₂）などにより決定される。実際の動作パラメータとして、シースガスの種類・流量、荷電微粒子の大きさ・価数など*

$$FWHM^2 = \text{const.} \times \frac{\left(b + \frac{1}{b}\right) \frac{R_1}{R_2} (R_1 + R_2) (kT)^2}{\mu \cdot \sigma^2 \cdot Q \cdot P \cdot d_p^2}$$

$$b = \frac{L}{R_2 - R_1}, \quad \text{const.} \cong 2.784$$

... (3)

【0040】分級分解能が相対半値全幅FWHMの逆数に比例するものであり、第(3)式を活用することで、シースガスの分子径σ、粘性率μの他にも、シースガス流量Q、分級動作圧力P、分級動作温度Tなどの分級動*

*が軌跡を決定している。これらのパラメータを適切に設定することにより、特定の粒径の微粒子を分級済エアロゾル取出口10から抽出することができる。すなわち分級を行うことが可能となる。通常は、横方向搬送速度と幾何学形状の設定により、分級後粒径の中心値を決定しておき、最後に静電界強度（ソフト的なパラメータとして）を調整することで、ある範囲では任意の分級後粒径を選ぶことができる。

【0038】現実には、この際分級精度が、有限のスリット幅、シースガス中におけるナノ微粒子のブラウン拡散の影響により、分級後も有限の粒径分布幅を持つことになる。本実施の形態では、分級領域幾何学形状として、L:20mm, R₁:25mm, R₂:35mm、シースガスとして、Arガスを20l/min、印加電圧を1-200Vの範囲で可変とし、-1価に荷電したSiナノ微粒子を対象とすることで、粒径中心値を5-10nmの範囲で任意に決定でき、分級後の粒径分布幾何標準偏差が1.2を実現している。

【0039】ここで、シースガスとしてArガスを用いるのは、Heの1.68倍の分子径σ、同じく1.13倍の粘性率μを持つため、同じ流量でも分級の分解能を向上させることができるからである。しかも、希ガスの中では最も安価である。2重円筒微分形DMA分級装置においては、シースガスの分子径σ及び粘性率μを大きく設定することにより、分級分解能を極めて有効に向上させることができる。これは、2重円筒微分形DMA微粒子分級装置の分級領域におけるエアロゾル（微粒子と媒質ガス：キャリアガスとシースガス）の挙動を、気体分子運動論に基づくブラウン拡散現象として解析することにより得られた、分級後における粒径分布の相対半値全幅FWHMの2乗を表現する次の第(3)式の関係式で説明することができる。

【数3】

※作パラメータの、分級分解能への依存性を導くことができる。この結果を（表2）にまとめておく。kはボルツマン定数である。

【表2】

シースガス流量 Q	Q^{as}
動作圧力 p	p^{as}
シースガス分子径 σ	σ
微粒子の粒径 d_p	d_p
動作温度 T	T^{-1}

【0041】本実施の形態では、Siナノ微粒子生成時に必要な軽いHeガスとは別に、シースガスとしては重いArガスを用いているのは、分子径 σ を大きくとることによって、分級分解能を向上させる意図がある。また、シースガス流量 Q もできるだけ大きく設定して分級分解能向上に寄与させている。分級動作圧力 p は、Siナノ微粒子生成時のHeガス圧力が低いため(10.0 Torr)むやみには高くできない。すなわち、エアロゾル取込部5の機構に制限される。さらに、動作温度であるが、これを低く設定することが分級分解能向上に有効ではあるが、現実的に装置全体を冷却することには大きなコストがかかるので、室温動作としている。最後に、対象微粒子の粒径 d_p であるが、これが小さくなるにつれて分級分解能が低下する傾向にある。数nm、特に5nm以下のナノ微粒子を対象とするDMA分級装置の設計には細心の注意が必要とされる。

【0042】

【発明の効果】以上のように、本発明によれば、エアロゾル発生領域からこれを分級装置へ差圧を利用して導入する方式のDMA型分級装置において、総圧としては同等かあるいは低いエアロゾル発生領域から、総圧としては同等かあるいは高い値をもつ分級装置内部に、エアロゾルを導入・分級することが可能となる。ここで、分級装置側に構成されたエアロゾル取り込み部が、特定のキャリアガスが流れる配管構造をしており、かつ前後の配管の径よりも細く設定したことで、分級装置側エアロゾル取り込み部の静圧をより効果的に下げることが可能としている。

【0043】また、エアロゾル発生領域における媒質ガス種と異なった種類の媒質ガス、特にエアロゾル発生領域における媒質ガス種より質量の大きい媒質ガスが、分級装置内部のキャリアガスもしくはシースガスとして導入される構成をとったことでさらに効果的に分級装置のエアロゾル取り込み部の静圧を下げることとなり、ひいてはより効率的にエアロゾルを分級装置に取り込むことができる。同時に、DMA型分級装置内における媒質ガス(キャリアガスもしくはシースガス)の質量が大きいために、分級領域での対象超微粒子のブラウン拡散による*

10*空間的散逸を抑制するので、結果として分級精度を上げることが可能としている。

【図面の簡単な説明】

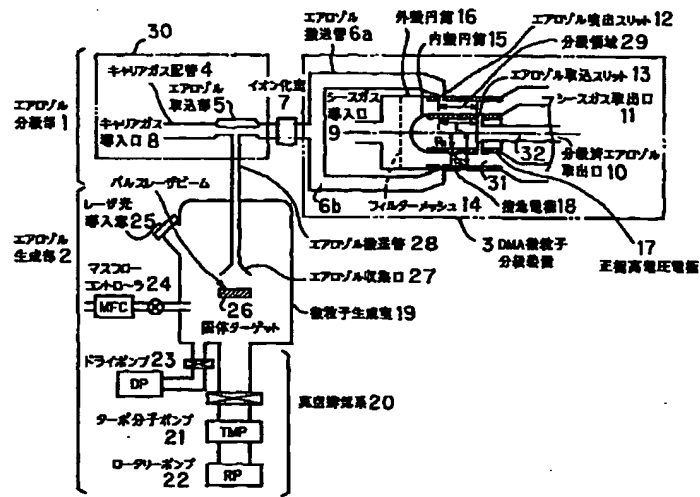
【図1】本発明の実施の形態における微粒子分級装置の断面模式図

【図2】本発明の実施の形態におけるエアロゾル取込部周辺の拡大図

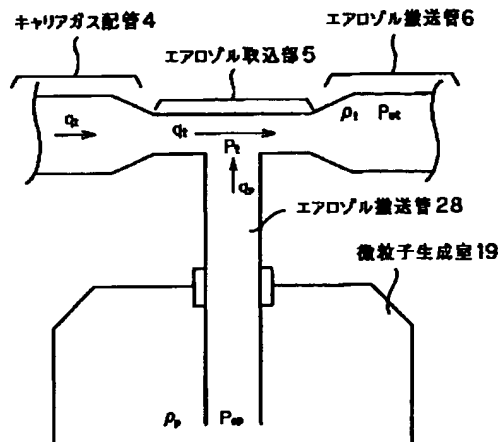
【符号の説明】

- 1 エアロゾル分級部
- 2 エアロゾル生成部
- 3 DMA微粒子分級装置
- 4 キャリアガス配管
- 5 エアロゾル取込部
- 6 エアロゾル搬送管
- 7 イオン化室
- 8 キャリアガス導入口
- 9 シースガス導入口
- 10 分級済エアロゾル取出口
- 11 シースガス取出口
- 12 エアロゾル噴出スリット
- 13 エアロゾル取込スリット
- 14 フィルターメッシュ
- 15 内殻円筒
- 16 外殻円筒
- 17 正極高電圧電極
- 18 接地電極
- 19 微粒子生成室
- 20 真空排気系
- 21 ターボ分子ポンプ
- 22 ロータリーポンプ
- 23 ドライポンプ
- 24 マスフローコントローラ
- 25 レーザ光導入窓
- 26 固体ターゲット
- 27 エアロゾル収集口
- 28 エアロゾル搬送管
- 29 分級領域
- 30 エアロゾル取込み装置

【図1】



【図2】



フロントページの続き

(72)発明者 鈴木 信 靖
神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1
号 松下技研株式会社内

(72)発明者 山 田 由 佳
神奈川県川崎市多摩区東三田3丁目10番1
号 松下技研株式会社内